

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-025765

(43)Date of publication of application : 25.01.2002

(51)Int.Cl.

H05B 33/04  
 C09K 11/06  
 C23C 14/34  
 C23C 16/30  
 H05B 33/10  
 H05B 33/14

(21)Application number : 2000-208014

(71)Applicant : KYUSHU MATSUSHITA DENKI KK  
 NAKAJIMA HIROSHI

(22)Date of filing : 10.07.2000

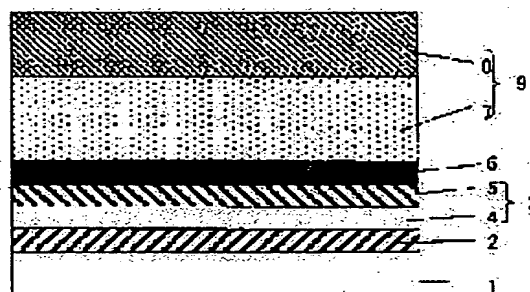
(72)Inventor : KOMATSU TAKAHIRO  
 GYOTOKU AKIRA  
 HAMANO TAKASHI  
 NAKAJIMA HIROSHI

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ITS MANUFACTURING METHOD

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an organic electroluminescent element of high reliability, having a protection part formed in the upper part of the electroluminescent element to allow film formation until a thickness for suppressing the dark spot grows perfectly and so dense as to prevent infiltration of moisture, oxygen, etc., from the outside and provide a manufacturing method of the device.

**SOLUTION:** The protection part 9 of the organic electroluminescent element is provided over the element and embodied in a laminate structure consisting of two or more substances including silicon nitride oxide 8. This constitution allows the protection part with a large film thickness to be formed readily, without destroying the element par with the stress and can completely preclude infiltration of moisture, oxygen, etc., from the outside.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

30.05.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-25765

(P2002-25765A)

(43) 公開日 平成14年1月25日 (2002.1.25)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード(参考)
H 0 5 B 33/04		H 0 5 B 33/04	3 K 0 0 7
C 0 9 K 11/06	6 0 2	C 0 9 K 11/06	6 0 2 4 K 0 2 9
	6 6 0		6 6 0 4 K 0 3 0
C 2 3 C 14/34		C 2 3 C 14/34	N
16/30		16/30	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-208014(P2000-208014)

(22) 出願日 平成12年7月10日 (2000.7.10)

(出願人による申告) 国等の委託研究の成果に係る特許出願 (平成11年度新エネルギー・産業技術総合開発機構「平成11年度地域コンソーシアム研究開発事業 (新有機エレクトロルミネッセンスデバイスの創成技術に関する研究開発)」再委託研究、産業活力再生特別措置法第30条の適用を受けるもの)

(71) 出願人 597000489

九州松下電器株式会社

福岡県福岡市博多区美野島四丁目1番62号

(71) 出願人 599131686

中島 寛

福岡県福岡市西区豊浜1丁目17番12号

(72) 発明者 小松 隆宏

福岡県福岡市博多区美野島四丁目1番62号

九州松下電器株式会社内

(74) 代理人 100097445

弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

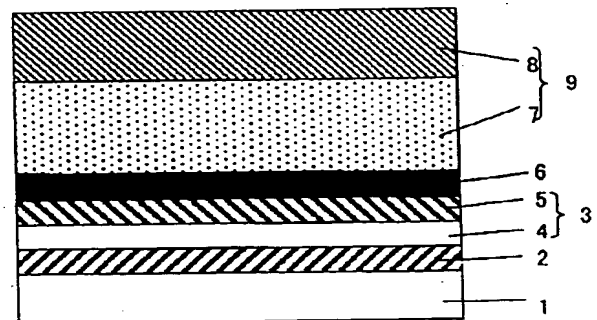
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法

## (57) 【要約】

【課題】 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子の上部に、ダークスポット成長を完全に抑制することが可能な膜厚まで形成でき、かつ緻密で外部からの水分、酸素等の侵入を防ぐことが可能な保護部を有する信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法を提供することを目的とする。

【解決手段】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、素子上部に配置した保護部9をシリコン窒化酸化物8を含む2種以上の物質からなる積層構造体としたものである。この構成によって、応力により素子部を破壊することなく厚膜の保護部を簡単に形成することができ、外部からの水分、酸素等の侵入を完全に防止することが可能となる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】透明または半透明の基板上に、少なくとも正孔を注入する陽極と、発光領域を有する発光層と、電子を注入する陰極を備え、さらに上部に保護部を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記保護部が2種以上の材料からなる積層構造体であり、かつ前記保護部の少なくとも一部分にシリコン窒化酸化物が使用されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】前記保護部がシリコン窒化酸化物と、それより内部応力の小さい層との積層構造体であることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】前記保護部が有機物とシリコン窒化酸化物との積層構造体であることを特徴とする請求項1、2いずれか1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】前記有機物が、高分子材料であることを特徴とする請求項3記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】前記保護部の大きさが素子発光部の面積よりも大きく、かつ保護部においてシリコン窒化酸化物の面積が最も大きいことを特徴とする請求項1～4いずれか1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】前記シリコン窒化酸化物がECRプラズマスパッタリング法、または、ECRプラズマCVD法によって成膜されることを特徴とする請求項1～5いずれか1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、種々の表示装置や表示装置の光源又はバックライト、若しくは光通信機器に使用される発光素子等に用いられる有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】エレクトロルミネッセンス素子とは、固体蛍光性物質の電界発光を利用した発光デバイスであり、これまでは主に無機系材料を発光体として用いた無機エレクトロルミネッセンス素子が実用化され、液晶ディスプレイのバックライト等に利用されてきた。

【0003】一方、有機材料を用いたエレクトロルミネッセンス素子についても古くから様々な検討が行われてきたが、発光効率が非常に悪いことから本格的な実用化研究へは進展しなかった。

【0004】しかし、1987年にコダック社のC. W. Tangらにより、有機材料を正孔輸送層と発光層の2層に分けた機能分離型の積層構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子が提案され、10V以下の低電圧にもかかわらず1000cd/m<sup>2</sup>以上の高い発光

輝度が得られることが明らかとなった〔C. W. Tang and S. A. Vanslyke: Appl. Phys. Lett., 51 (1987) 913等参照〕。これ以降、有機エレクトロルミネッセンス素子が俄然注目され始め、同様な機能分離型の積層構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子についての研究が盛んに行われるようになり、現在では一部で実用化されるまでになった。

【0005】ここで、従来の一般的な有機エレクトロルミネッセンス素子の構成について図3を用いて説明する。

【0006】図3は従来の有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図である。

【0007】図3において、1は基板、2は陽極、3は有機薄膜層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は陰極である。

【0008】図3に示すように有機エレクトロルミネッセンス素子は、ガラス等の透明または半透明の基板上にスパッタリング法や抵抗加熱蒸着法等により形成されたITO等の透明な導電性膜からなる陽極2と、陽極2上に同じく抵抗加熱蒸着法等により形成されたN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ジフェニル-4, 4'-ジアミン(以下、TPDと略称する)等からなる正孔輸送層4と、正孔輸送層3上に抵抗加熱蒸着法等により形成された8-Hydroxyquinoline Aluminum(以下、Alq<sub>3</sub>と略称する。)等からなる発光層5と、発光層5上に抵抗加熱蒸着法等により形成された100nm～300nmの膜厚の金属膜からなる陰極6と、を備えている。

【0009】上記構成を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の陽極2をプラス極、また陰極6をマイナス極として直流電圧又は直流電流を印加すると、陽極2から正孔輸送層4を介して発光層5に正孔が注入され、陰極6から発光層5に電子が注入される。発光層5では正孔と電子の再結合が生じ、これに伴って生成される励起子が励起状態から基底状態へ移行する際に発光現象が起こる。

【0010】このような有機エレクトロルミネッセンス素子は特性向上のため陰極として活性が高い合金材料を使用する場合が多く、空気中の水分や酸素との反応による腐食や酸化を生じ易い。このような陰極の劣化は、発光層内に存在するダークスポット(D. S.)と呼ばれる未発光部を著しく成長させ、有機エレクトロルミネッセンス素子における経時的な特性劣化の原因となっている。

【0011】また、陰極に限らず、発光層や正孔輸送層等の有機薄膜層に用いられる有機材料についても、一般に水分や酸素との反応によって構造の変化を生じるため、同様にダークスポットの成長を招く原因となる。

【0012】本願発明者らは、ダークスポットの成長に関して様々な観点から検討した結果、例えば $10^{-4}$  Torr程度の真空中に存在するような極微量の水分であっても、ダークスポットの成長を促進させてしまうことを発見した。したがって、ダークスポットの成長を完全に抑制し、有機エレクトロルミネッセンス素子の耐久性や信頼性を高めるためには、陰極や有機薄膜層に用いる材料と水分や酸素との反応を防止するために、有機エレクトロルミネッセンス素子全体が封止されている必要がある。

【0013】この有機エレクトロルミネッセンス素子の封止については、これまで多くの検討が行われてきた。例えば特開平5-089959号公報に開示されているように、絶縁性無機化合物からなる保護膜を形成した後、電気絶縁ガラス又は電気絶縁性気密流体によりシールドする方法や、特開平6-176867号公報や特開平9-148066号公報に記載の封着した気密容器内に乾燥剤を封入する方法等がある。しかしながら、これらの方法はいずれも有機エレクトロルミネッセンス素子の特徴である薄型化を損なうだけでなく、今後需要が高

まると予想されるフィルム化には対応が困難である。【0014】また、フィルム化に対応した封止法としては、保護膜を形成して有機エレクトロルミネッセンス素子を被覆することが提案されており、例えば特開平10-261487号公報ではSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>やダイヤモンド様炭素膜等をECRプラズマCVD法により有機エレクトロルミネッセンス素子の外表面に形成する方法が開示されている。

【0015】本願発明者らは、ダークスポットの成長機構についても解析を重ねた結果、ダークスポットの中心部には核となる物質が存在し、この核部を介して水分が素子部へと進入することが原因であることを発見した。ところがこの核はサブミクロンの非常に小さなものから、数十ミクロン単位の非常に大きなものまであり、これら全ての核への水分の侵入を防ぐには、保護膜として(1)膜単体の透湿性が低いこと、(2)厚膜形成が可能なこと、が必要不可欠となる。しかしながら、上述したようなこれまでの方法では(1)(2)共に満足できる保護膜の提案はなされていなかった。

【0016】また、本願発明者らはダークスポット成長と同様な現象として、発光面端部から非発光領域が次第に成長していくことを発見した。これは有機エレクトロルミネッセンス素子の端部では有機材料が剥き出しになっており、そこから水分が進入することに起因するものであり、特に高精細のドット状に発光面を形成した場合ではその影響が非常に大きなものとなる。しかしながら、このような発光面端部からの非発光領域成長を抑制する方法はこれまでのところ提案されていなかった。

【0017】

【発明が解決しようとする課題】このように有機エレクト

トルミネッセンス素子のダークスポットの成長を完全に抑制し、かつフィルム化、薄型化等にも対応した封止法や、さらには発光面端部からの非発光領域成長を抑制する方法は現在までのところ確立されていない。

【0018】本発明は上記課題を解決するものであり、有機エレクトロルミネッセンス素子の上部に、ダークスポット成長を完全に抑制することが可能な膜厚まで形成でき、かつ緻密で外部からの水分、酸素等の侵入を防ぐことが可能な保護部を有する信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法を提供することを目的とする。

【0019】

【課題を解決するための手段】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、素子上部に配置した保護部をシリコン窒化酸化物を含む2種以上の物質からなる積層構造体としたものである。この構成によって、応力により素子部を破壊することなく厚膜の保護部を簡単に形成することができ、外部からの水分、酸素等の侵入を完全に防止することが可能となる。

【0020】

【発明の実施の形態】本発明の請求項1に記載の発明は、透明または半透明の基板上に、少なくとも正孔を注入する陽極と、発光領域を有する発光層と、電子を注入する陰極を備え、さらに上部に保護部を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、保護部が2種以上の物質からなる積層構造体であり、かつ保護部の少なくとも一部分にシリコン窒化酸化物が使用されたことを特徴としたものであり、素子部を破壊することなく厚膜化した保護部により外部からの水分、酸素等の進入を完全に防ぐことが可能になるため、ダークスポットの成長を抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

【0021】このシリコン窒化酸化物は、SiO<sub>2</sub>やSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>に比べ応力が小さいためデバイスへの影響を低く抑えることが可能である。また、その透湿性もSiO<sub>2</sub>より優れており、高耐湿性を必要とする有機エレクトロルミネッセンス素子の封止には最適である。

【0022】しかし、SiONの応力は小さいとは言え、単体で有機エレクトロルミネッセンス素子に必要な厚膜を形成することは非常に困難であるため他の材料との組み合わせで保護部を形成する必要がある。

【0023】本発明の請求項2に記載の発明は、請求項1において、保護部がシリコン窒化酸化物と、それより内部応力の小さい層との積層構造体であることを特徴としたものであり、シリコン窒化酸化物により保護部の低透湿化が、また内部応力の小さい物質により厚膜化が可能になり、ダークスポットの成長を抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

【0024】本発明の請求項3に記載の発明は、請求項

10

20

30

40

50

1, 2において、保護部が有機物とシリコン窒化酸化物の積層構造体であることを特徴としたものであり、厚膜化が容易な有機物と、シリコン窒化酸化物とを組み合わせることにより厚膜の保護膜を比較的簡単に形成することができ、ダークスポットの成長を抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができ

【0025】本発明の請求項4に記載の発明は、請求項3において、有機物が、高分子材料であることとしたものであり、塗布法等により厚膜を比較的容易に形成でき、ダークスポットの成長を抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

【0026】本発明の請求項5に記載の発明は、請求項1～4において、保護部の大きさが素子発光部の面積よりも大きく、かつ保護部においてシリコン窒化酸化物の面積が最も大きいことを特徴としたものであり、低透湿のシリコン窒化酸化物により素子発光部および保護部形成材料を完全に覆うことで、保護部端部からの水分の進入を抑えることができ、非発光領域の成長を抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

【0027】本発明の請求項6に記載の発明は、請求項1～5において、シリコン窒化酸化物がECRプラズマスパッタリング法、またはECRプラズマCVD法によって成膜されることを特徴としたものであり、低透湿膜を低温で形成することが可能であるため、素子部を破壊することなく、安定して保護部を形成することができる。

【0028】上記有機エレクトロルミネッセンス素子の基板としては、透明又は半透明なガラス、PET（ポリエチレンテレフタレート）、ポリカーボネート、非晶質ポリオレフィン等が用いることができる。更に、これらの材料を薄膜とした可撓性を有するものやフレキシブル基板でも良い。なお、本発明において、透明または半透明なる定義は、有機エレクトロルミネッセンス素子による発光の視認を妨げない程度の透明性を示すものである。

【0029】また、陽極としては、ITO、ATO（Sbをドープした $\text{SnO}_2$ ）、AZO（Alをドープした $\text{ZnO}$ ）等が用いられる。

【0030】また、有機薄膜層は、発光層のみの単層構造の他に、正孔輸送層と発光層又は発光層と電子輸送層の2層構造や、正孔輸送層と発光層と電子輸送層の3層構造のいずれの構造でもよい。但し、このような2層構造又は3層構造の場合には、正孔輸送層と陽極が、又は電子輸送層と陰極が接するように積層して形成される。

【0031】また、発光層としては、可視領域で蛍光特性を有し、かつ成膜性の良い蛍光体からなるものが好ましく、Alq<sub>3</sub>やBe-ベンゾキノリノール（BeBq<sub>3</sub>）の他に、2, 5-ビス（5, 7-ジ-*t*-ベンチ

ル-2-ベンゾオキサゾリル）-1, 3, 4-チアアジアゾール、4, 4'-ビス（5, 7-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル）スチルベン、4, 4'-ビス〔5, 7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕スチルベン、2, 5-ビス（5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル）チオフィン、2, 5-ビス〔〔5- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル〕-2-ベンゾオキサゾリル〕チオフエン、2, 5-ビス〔5, 7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕-3, 4-ジフェニルチオフエン、2, 5-ビス（5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル）チオフエン、4, 4'-ビス（2-ベンゾオキサゾリル）ビフェニル、5-メチル-2-〔2-〔4-（5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル）フェニル〕ビニル〕ベンゾオキサゾリル、2-〔2-〔4-クロロフェニル〕ビニル〕ナフト〔1, 2-d〕オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2, 2'-（*p*-フェニレンジビニレン）-ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2-〔2-〔4-（2-ベンゾイミダゾリル）フェニル〕ビニル〕ベンゾイミダゾール、2-〔2-〔4-カルボキシフェニル〕ビニル〕ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤や、トリス（8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）マグネシウム、ビス（ベンゾ〔f〕-8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノール）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノール）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノール）カルシウム、ポリ〔亜鉛-ビス（8-ヒドロキシ-5-キノリノール）メタン〕等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエビンドリジオン等の金属キレート化オキシノイド化合物や、1, 4-ビス（2-メチルスチリル）ベンゼン、1, 4-（3-メチルスチリル）ベンゼン、1, 4-ビス（4-メチルスチリル）ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1, 4-ビス（2-エチルスチリル）ベンゼン、1, 4-ビス（3-エチルスチリル）ベンゼン、1, 4-ビス（2-メチルスチリル）2-メチルベンゼン等のスチリルベンゼン系化合物や、2, 5-ビス（4-メチルスチリル）ピラジン、2, 5-ビス（4-エチルスチリル）ピラジン、2, 5-ビス〔2-（1-ナフチル）ビニル〕ピラジン、2, 5-ビス（4-メトキシスチリル）ピラジン、2, 5-ビス〔2-（4-ビフェニル）ビニル〕ピラジン、2, 5-ビス〔2-（1-ビレニル）ビニル〕ピラジン等のジスチリルピラジン誘導体や、ナフタルイミド誘導体や、ペリレン誘導体や、オキサジアゾール誘導体や、アルダジン誘導体や、シクロペンタジエン誘導体や、スチリルアミン誘導体や、クマリン系誘導体や、芳香族ジメチリデン誘導体等が用いられる。さら

に、アントラセン、サリチル酸塩、ピレン、コロネン等も用いられる。

【0032】また、正孔輸送層としては、正孔移動度が高く、透明で成膜性の良いものが好ましくTPDの他に、ボルフィン、テトラフェニルボルフィン銅、フタロシアニン、銅フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキサイド等のポリフィリン化合物や、1, 1-ビス(4-(ジ-*P*-トリルアミノ)フェニル)シクロヘキサン、4, 4', 4''-トリメチルトリフェニルアミン、N, N, N', N'-テトラキス(*P*-トリル)-*P*-フェニレンジアミン、1-(N, N-ジ-*P*-トリルアミノ)ナフタレン、4, 4'-ビス(ジメチルアミノ)-2-2'-ジメチルトリフェニルメタン、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノビフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ-*m*-トリル-4, N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-4, 4'-ジアミン、4'-ジアミノビフェニル、N-フェニルカルバゾール等の芳香族第三級アミンや、4-ジ-*P*-トリルアミノスチルベン、4-(ジ-*P*-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-*P*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン等のスチルベン化合物や、トリアゾール誘導体や、オキサジザゾール誘導体や、イミダゾール誘導体や、ポリアリアルアルカン誘導体や、ピラゾリン誘導体や、ピラゾロン誘導体や、フェニレンジアミン誘導体や、アニールアミン誘導体や、アミノ置換カルコン誘導体や、オキサゾール誘導体や、スチリルアントラセン誘導体や、フルオレノン誘導体や、ヒドラゾン誘導体や、シラザン誘導体や、ポリシラン系アニリン系共重合体や、高分子オリゴマーや、スチリルアミン化合物や、芳香族ジメチルリデン系化合物や、ポリ3-メチルチオフェン等の有機材料が用いられる。また、ポリカーボネート等の高分子中に低分子の正孔輸送層用の有機材料を分散させた、高分子分散系の正孔輸送層も用いられる。

【0033】また、電子輸送層としては、1, 3-ビス(4-*tert*-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾリル)フェニレン(OXD-7)等のオキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノン誘導体等が用いられる。

【0034】また、陰極としては、仕事関数の低い金属もしくは合金が用いられ、Al, In, Mg, Ti等の金属や、Mg-Ag合金、Mg-In合金等のMg合金や、Al-Li合金、Al-Sr合金、Al-Ba合金等のAl合金等が用いられる。

【0035】以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

【0036】(実施の形態1) 本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子について述べる。

【0037】図1は、本発明の一実施の形態における有

機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図である。

【0038】図1において、基板1、陽極2、有機薄膜層3、正孔輸送層4、発光層5、陰極6は従来の技術で説明した従来例と基本的に同様のものであるので、同一の符号を付して説明を省略する。また9は保護部であり、有機材料7とシリコン窒化酸化物(SiON)8との積層構造体である。

【0039】図1に示したように、本実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子は、保護部以外の構成材料、形成法等は従来の素子とほぼ同じである。

【0040】本実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子が、従来例と異なっているのは、陰極上部に設けた保護部が有機材料とシリコン窒化酸化物(SiON)の積層構造体となっている点である。これにより応力等により有機エレクトロルミネッセンス素子を破壊することなく保護部を厚膜化することが可能となり、ダークスポットの成長を抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

【0041】なお、本実施の形態においても、有機薄膜層が正孔輸送層と発光層からなる2層構造の場合について説明したが、その構造については前述のように、特にこれに限定されるものではない。

【0042】同様に保護部の構成についても有機材料とシリコン窒化酸化物(SiON)からなる2層構造の場合についてのみ説明したが、その構成については特にこれに限定されるものではなく、厚膜化と低透湿性を両立できるものであれば有機材料/シリコン窒化酸化物(SiON)/有機材料、シリコン窒化酸化物(SiON)/有機材料/シリコン窒化酸化物(SiON)の3層構造等、構成、順番等はどのようなものであってもよい。

【0043】また、この保護部に使用される有機材料としては前述した有機エレクトロルミネッセンス素子の構成材料や、ポリバラキシリレン、ポリクロロバラキシリレン、ポリイミド等の高分子材料等、低応力で厚膜化が可能なるものであればどのようなものであってもよい。

【0044】(実施の形態2) 本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子について述べる。

【0045】図2は、本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図である。

【0046】図2において、基板1、陽極2、有機薄膜層3、正孔輸送層4、発光層5、陰極6は従来例と同様のものであるので、同一の符号を付して説明を省略する。また実施の形態1と同様に9は保護部であり、有機材料7とシリコン窒化酸化物(SiON)8との積層構造体からなる。

【0047】図2に示したように、本実施の形態においても有機エレクトロルミネッセンス素子は、保護部以外の構成材料、形成法等は従来の素子と同様である。

【0048】本実施の形態における有機エレクトロルミ

ネッセンス素子が、従来例と異なっているのは、陰極上部に設けた保護部が有機材料とシリコン窒化酸化物(SiON)の積層構造体となっており、かつこのシリコン窒化酸化物(SiON)が他の保護部形成材料よりも面積が大きく素子端部まで被覆している点である。これにより素子上部からの水分進入だけでなく、端部からの進入も抑制することが可能となり、ダークスポットの成長だけでなく発光面端部非発光領域の成長も抑えた信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

【0049】なお、本実施の形態においても、有機薄膜層が正孔輸送層と発光層からなる2層構造の場合について説明したが、その構造については前述のように特にこれに限定されるものではない。

【0050】同様に保護部の構成についても有機材料とシリコン窒化酸化物(SiON)からなる2層構造の場合についてのみ説明したが、その構成については特にこれに限定されるものではなく、厚膜化と低透過性を両立できるものであれば有機材料/シリコン窒化酸化物(SiON)/有機材料、シリコン窒化酸化物(SiON)/有機材料/シリコン窒化酸化物(SiON)の3層構造等、構成、順番等はどのようなものであってもよい。

【0051】

【実施例】(実施例1) スパッタリング法により、ガラス基板上に膜厚160nmのITO膜を形成した後、ITO膜上にレジスト材(東京応化社製、OFPR-800)をスピンコート法により塗布して厚さ10μmのレジスト膜を形成し、マスク、露光、現像してレジスト膜を所定の形状にパターンニングした。次に、このガラス基板を60℃で50%の塩酸中に浸漬して、レジスト膜が形成されていない部分のITO膜をエッチングした後、レジスト膜も除去し、所定のパターンのITO膜からなる陽極が形成されたガラス基板を得た。

【0052】次に、このガラス基板を、洗剤(フルウチ化学社製、セミコクリーン)による5分間の超音波洗

\* 浄、純水による10分間の超音波洗浄、アンモニア水1(体積比)に対して過酸化水素水1と水5を混合した溶液による5分間の超音波洗浄、70℃の純水による5分間の超音波洗浄の順に洗浄処理した後、窒素ブローでガラス基板に付着した水分を除去し、さらに250℃に加熱して乾燥した。

【0053】次に、ガラス基板の陽極側の表面に、 $2 \times 10^{-6}$  Torr以下の真空度まで減圧した抵抗加熱蒸着装置内にて、正孔輸送層としてTPDを約50nmの膜厚で形成した。

【0054】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、正孔輸送層上に発光層としてAlq<sub>3</sub>を約60nmの膜厚で形成した。なお、TPDとAlq<sub>3</sub>の蒸着速度は、共に0.2nm/sであった。

【0055】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、発光層上に15at%のLiを含むAl-Li合金を蒸着源として、陰極を150nmの膜厚で成膜した。

【0056】この有機エレクトロルミネッセンス素子の上部に、スピンコート法若しくはスクリーン印刷法により光硬化性エポキシ樹脂(スリーボンド社製、30Y-296G)を任意の厚さに塗布し、その後高圧水銀ランプにて樹脂を硬化した。さらにその上部にECRプラズマスパッタリング法によりシリコン窒化酸化物(SiON)を0.5μm積層した素子を形成した。

【0057】なお成膜条件は膜の内部応力が小さくなるよう、マイクロ波パワー(microwave power)=300W、RFパワー=100W、ガス流量(Ar)=16sccm、Flow Rate Ratio O<sub>2</sub>/(N<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>)=0.05とした。

【0058】このようにして得られた素子について、保護部構成及びその膜厚と発光安定性、成長するダークスポット数との関係を調べた結果を(表1)に示す。

【0059】

【表1】

エポキシ層膜厚(μm)	0	0	0.5	1.5	2.5	4.5	9.5	29.5
SiON膜厚(μm)	0	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
発光安定性	○	○	○	○	○	○	○	○
成長ダークスポット数	x	x	x	△	△→○	○	◎	◎

【0060】(表1)の結果から明らかなように、エポキシ樹脂+シリコン窒化酸化物(SiON)で保護した素子では、保護部の厚さを厚くすることにより、成長するダークスポット数は減少し、特に5μm以上ではその効果が顕著であった。

【0061】また、発光安定性についても検討を行ったが、樹脂厚を厚くしても短絡、剥離等の素子部への悪影響はなく安定発光が可能であった。

【0062】更に、保護部の厚さを10μm以上としたものではダークスポットの成長をほぼ完全に抑制することが可能となった。

【0063】(実施例2) 実施例1と同様にして有機エレクトロルミネッセンス素子を形成した後、(1)エポキシ樹脂(9.5μm)+シリコン窒化酸化物(SiON)(0.5μm)で保護し、エポキシ樹脂の面積がシリコン窒化酸化物(SiON)に比べ大きいもの、

(2)エポキシ樹脂(9.5μm)+シリコン窒化酸化物(SiON)(0.5μm)で保護し、シリコン窒化酸化物(SiON)の面積がエポキシ樹脂に比べ大きく、素子端部がシリコン窒化酸化物(SiON)によって完全に覆われているもの、の2種類の素子を作製し

た。



【0064】以上の素子を60℃90%RHの環境下で保存し、保護部の構成、形状と、ダークスポット及び発光面端部非発光領域の成長との関係について調べた。結果を（表2）に示す。

保護部構成	ダークスポット成長			発光面端部非発光領域成長		
	100時間	500時間	1000時間	100時間	500時間	1000時間
(1)エポキシ樹脂(9.5 $\mu$ m) SiON(0.5 $\mu$ m) 面積:エポキシ樹脂>SiON	◎	◎	◎	○	△	×
(2)エポキシ樹脂(9.5 $\mu$ m) SiON(0.5 $\mu$ m) 面積:エポキシ樹脂<SiON	◎	◎	◎	◎	◎	◎

【0066】（表2）の結果から明らかなように、いずれの素子においても、SiONの大きさにかかわらず素子上部からの水分進入はほぼ完全に抑えられており、1000時間後においてもダークスポットの成長は見られなかった。

【0067】一方、発光面端部からの水分進入による非発光領域の成長については、エポキシ樹脂+SiONであってもSiONの面積が小さく素子端部がSiONによって覆われていない素子では、次第に水分が進入し非発光領域の成長が確認された。

【0068】これに対し、同じエポキシ樹脂+SiONであってもSiONの面積がエポキシ樹脂よりも大きく素子端部がSiONによって完全に覆われている素子では、長時間の保存においても水分の進入はなく非発光領域の成長も見られなかった。

【0069】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば有機エレクトロルミネッセンス素子の上部に、ダークスポットの成長を完全に抑制することが可能な膜厚まで形成でき、かつ緻密で外部からの水分、酸素等の進入を防ぐことが※30

※可能な保護部を設けることにより信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法を提供することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図

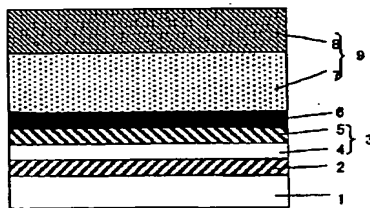
【図2】本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図

【図3】従来の有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図

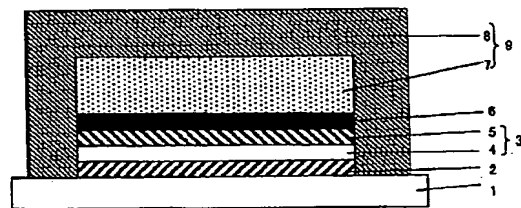
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 有機薄膜層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 陰極
- 7 有機材料
- 8 シリコン窒化酸化物（SiON）
- 9 保護部

【図1】



【図2】



【図3】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.

識別記号

F 1

キーワード (参考)

H 0 5 B 33/10

H 0 5 B 33/10

33/14

33/14

A

(72)発明者 行徳 明

F ターム (参考) 3K007 AB11 AB13 AB18 BB01 CA01

福岡県福岡市博多区美野島四丁目1番62号

CA05 CA06 CB01 DA01 DB03

九州松下電器株式会社内

EA01 EB00 FA01 FA02

(72)発明者 濱野 敬史

4K029 AA09 AA24 BA41 BC07 BD00

福岡県福岡市博多区美野島四丁目1番62号

CA05 DC48 FA07

九州松下電器株式会社内

4K030 BA29 BA35 CA06 CA12 FA02

(72)発明者 中島 寛

LA18

福岡県福岡市西区豊浜1丁目17番12号